

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-283369

(43)Date of publication of application : 03.10.2002

(51)Int.Cl. B29C 41/24
C08G 73/10
C08J 5/18
// B29K 79:00
B29L 7:00
C08L 79:08

(21)Application number : 2001-086452 (71)Applicant : KANEGAFUCHI CHEM IND CO LTD
(22)Date of filing : 23.03.2001 (72)Inventor : KANESHIRO NAGAYASU
ITO TOSHINAO
YABUTA KATSUNORI
AKAHORI RENICHI

(54) METHOD FOR MANUFACTURING POLYIMIDE FILM**(57)Abstract:**

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a method for manufacturing a polyimide film without bringing about the lowering of strength with high productivity.

SOLUTION: A polyamic acid varnish mixed with a chemical conversion agent and a catalyst is cast on a support to be stepwise heated and the cast layer is peeled to be cured and dried to manufacture the polyimide film without bringing about the lowering of strength with good productivity.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号
特開2002-283369
(P2002-283369A)

(43) 公開日 平成14年10月3日 (2002. 10. 3)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テマコード* (参考)
B 2 9 C 41/24		B 2 9 C 41/24	4 F 0 7 1
C 0 8 G 73/10		C 0 8 G 73/10	4 F 2 0 5
C 0 8 J 5/18	C F G	C 0 8 J 5/18	C F G 4 J 0 4 3
// B 2 9 K 79:00		B 2 9 K 79:00	
B 2 9 L 7:00		B 2 9 L 7:00	

審査請求 未請求 請求項の数 5 O L (全 6 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2001-86452(P2001-86452)

(22) 出願日 平成13年3月23日 (2001. 3. 23)

(71) 出願人 000000941

鐘淵化学工業株式会社

大阪府大阪市北区中之島3丁目2番4号

(72) 発明者 金城 永泰

京都府宇治市神明宮東23-100

(72) 発明者 伊藤 利尚

滋賀県大津市比叡辻1-25-1

(72) 発明者 藪田 勝典

滋賀県大津市衣川1-26-25

(72) 発明者 赤堀 康一

滋賀県大津市雄琴北2丁目23-6

(74) 代理人 100078282

弁理士 山本 秀策

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 ポリイミドフィルムの製造方法

(57) 【要約】

【課題】 強度低下をきたすことなく、高い生産性を有するポリイミドフィルムの製造方法を提供する。

【解決手段】 化学的転化剤と触媒を混合したポリアミド酸ワニスを支持体上に流延し、支持体上で段階的に加熱した後、支持体から剥離して加熱して硬化・乾燥することにより、強度低下をきたさず、生産性良くポリイミドフィルムを製造することができる。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 ポリアミド酸の有機溶剤溶液、化学的転化剤および触媒を含有するポリアミド酸組成物を支持体上に流延する工程、

該支持体上のポリアミド酸組成物を、少なくとも2水準の温度水準で連続的に加熱する工程、

該支持体から、部分的に硬化及び／または部分的に乾燥されたポリアミド酸フィルムを剥離する工程、および該ポリアミド酸フィルムのアミド酸をイミド化し、かつこのフィルムを乾燥する工程、を包含するポリイミドフィルムの製造方法。

【請求項2】 前記触媒が3級アミンである請求項1記載のポリイミドフィルムの製造方法。

【請求項3】 前記支持体上でポリアミド酸組成物を少なくとも2水準の温度水準で連続的に加熱する工程が、温度T1で加熱する工程と、温度T1より高い温度T2で加熱する工程とを包含し、該温度T1が80℃～160℃であり、温度T2が120℃～200℃である請求項1記載のポリイミドフィルムの製造方法。

【請求項4】 請求項1～3のいずれかの方法により製造されたポリイミドフィルム。

【請求項5】 以下の式(1)に定める加熱減量率が0.2～2.5重量%であり、かつ、この加熱減量のうち、フィルムの総重量に対して0.01重量%以上が触媒である請求項4記載のポリイミドフィルム：

$$(\text{加熱減量率}) = (X - Y) / Y \quad \dots (1)$$

式(1)中、Xは150℃、10分加熱後のフィルム質量を表し、Yは450℃、20分加熱後のフィルム質量を表す。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、生産性が良く、しかも高い強度を有するポリイミドフィルムの製造方法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】ポリイミドフィルムは、耐熱性、絶縁性、耐溶剤性および耐低温性等を備えており、コンピュータ並びにIC制御の電気・電子機器部品材料として広く用いられている。

【0003】近年、携帯電話などの小型汎用機器にポリイミドフィルムが多く使用されるようになり、ポリイミドフィルムに対する需要も益々増大してきており、さらなる高生産性を有するポリイミドフィルムの製造方法の開発が急がれている。

【0004】通常ポリイミドフィルムは、熱キュア法または化学キュア法のいずれかの方法により製造されている。たとえば熱キュア法の場合、ポリイミド前駆体であるポリアミック酸ワニスから溶媒を除去してポリアミック酸フィルムを形成した後、加熱することによりポリイミドフィルムに変換する(例えば、特開平11-930

号公報、特開平8-230063号公報および特開平9-227697号公報参照)。

【0005】この方法において加熱時間を短縮しようとすると十分な物性を発現しない、フィルムが割れてしまう等の問題が出てくる。

【0006】また、化学キュア法の場合、ポリアミック酸ワニスに化学イミド化剤を混合した後、乾燥させてポリイミドフィルムを得るが、生産性を向上するために部分的に硬化及び／または部分的に乾燥されたポリアミド酸フィルム(ゲルフィルム)の作成時間を短くしようとすると、化学イミド化が不十分になり、引裂伝搬強度、引張強度および接着強度など基本的な機械的強度の低下をきたすという問題点があった。

【0007】

【発明が解決しようとする課題】上記状況に鑑み、本発明者らは鋭意検討を行った結果、高い生産性を有し、かつ高い機械的強度を有するポリイミドフィルムの製造方法を提供することを目的とするものである。

【0008】

【課題を解決するための手段】本発明にかかるポリイミドフィルムの製造方法は、ポリアミド酸有機溶剤溶液に化学的転化剤および触媒を混合後、得られたポリアミド酸組成物を支持体上に流延し、支持体上で少なくとも2水準の温度水準で加熱した後、支持体からポリアミド酸フィルムを剥離して部分的に硬化及び／または部分的に乾燥されたポリアミド酸フィルムを得、その後ポリアミド酸フィルム中に含まれる残ったアミド酸をイミド化し、かつこのフィルムを乾燥することを内容とする。

【0009】また、本発明にかかるポリイミドフィルムは、前記方法により製造されたポリイミドフィルムを内容とする。

【0010】さらに、本発明にかかるポリイミドフィルムは、ポリアミド酸有機溶剤溶液に化学的転化剤および触媒を混合後、得られたポリアミド酸組成物を支持体上に流延し、支持体上で少なくとも2水準の温度水準で加熱した後、支持体からポリアミド酸フィルムを剥離して部分的に硬化及び／または部分的に乾燥されたポリアミド酸フィルムを得、その後残ったアミド酸をイミド化し、かつこのフィルムを乾燥して得られる、加熱減量率が0.2～2.5重量%であり、かつ、この加熱減量のうち、フィルムの総重量に対して0.01重量%以上が触媒であるポリイミドフィルムを内容とする。

【0011】

【発明の実施の形態】以下、本発明のポリイミドフィルムの製造方法についてその実施の形態の一例に基づき説明する。なお、「部」は全て重量部を意味する。

【0012】本発明に用いられるポリイミドの前駆体であるポリアミド酸は、基本的には、公知のあらゆるポリアミド酸を適用することができる。

【0013】本発明に用いられるポリアミド酸は、通

常、芳香族酸二無水物の少なくとも1種とジアミンの少なくとも1種を、実質的等モル量を有機溶媒中に溶解させて、得られたポリアミド酸有機溶媒溶液を、制御された温度条件下で、上記酸二無水物とジアミンの重合が完了するまで攪拌することによって製造される。これらのポリアミド酸溶液は通常5〜35重量%、好ましくは10〜30重量%の濃度で得られる。この範囲の濃度である場合に適当な分子量と溶液粘度を得る。

【0014】また、ポリイミドはポリアミド酸をイミド化して得られるが、本発明におけるイミド化には、化学キユア法を用いる。化学キユア法は、ポリアミド酸有機溶媒溶液に、無水酢酸等の酸無水物に代表される化学的転化剤と、イソキノリン、β-ピコリン、ピリジン等の第三級アミン類等に代表される触媒とを作用させる方法である。化学キユア法に熱キユア法を併用してもよい。イミド化の反応条件は、ポリアミド酸の種類、フィルムの厚さ等により、変動し得る。

【0015】前記ポリアミド酸有機溶媒溶液に化学的転化剤と触媒とを混合後、得られたポリアミド酸組成物を支持体上に流延して支持体上で少なくとも2段階以上の温度段階で加熱した後、支持体からフィルムを剥離して部分的に硬化及び／または部分的に乾燥されたポリアミド酸フィルムを得、その後残ったアミド酸をイミド化し、かつこのフィルムを乾燥する事により本発明にかかるポリイミドフィルムの製造方法が構成される。

【0016】ここで、本発明にかかるポリイミドの前駆体であるポリアミド酸組成物に用いられる材料について説明する。

【0017】ポリイミドにおける使用のための適当な酸無水物は、ピロメリット酸二無水物、2, 3, 6, 7-ナフタレンテトラカルボン酸二無水物、3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、1, 2, 5, 6-ナフタレンテトラカルボン酸二無水物、2, 2', 3, 3'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、3, 3', 4, 4'-ベンゾフェノンテトラカルボン酸二無水物、2, 2-ビス(3, 4-ジカルボキシフェニル)プロパン二無水物、3, 4, 9, 10-ペリレンテトラカルボン酸二無水物、ビス(3, 4-ジカルボキシフェニル)プロパン二無水物、1, 1-ビス(2, 3-ジカルボキシフェニル)エタン二無水物、1, 1-ビス(3, 4-ジカルボキシフェニル)エタン二無水物、ビス(2, 3-ジカルボキシフェニル)メタン二無水物、ビス(3, 4-ジカルボキシフェニル)エタン二無水物、オキシジフタル酸二無水物、ビス(3, 4-ジカルボキシフェニル)スルホン二無水物、p-フェニレンビス(トリメリット酸モノエステル酸無水物)、エチレンビス(トリメリット酸モノエステル酸無水物)、ビスフェノールAビス(トリメリット酸モノエステル酸無水物)及びそれらの類似物を含み、これらを単独または、任意の割合の混合物が好ましく用い得る。

【0018】これらのうち、本発明に使用されるポリアミド酸組成物において最も適当な酸二無水物は、ピロメリット酸二無水物、3, 3', 4, 4'-ベンゾフェノンテトラカルボン酸二無水物、3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、p-フェニレンビス(トリメリット酸モノエステル酸無水物)であり、これらを単独または、任意の割合の混合物が好ましく用い得る。

【0019】本発明に使用されるポリアミド酸組成物において使用し得る適当なジアミンは、4, 4'-ジアミノジフェニルプロパン、4, 4'-ジアミノジフェニルメタン、ベンジジン、3, 3'-ジクロロベンジジン、4, 4'-ジアミノジフェニルスルフィド、3, 3'-ジアミノジフェニルスルホン、4, 4'-ジアミノジフェニルスルホン、4, 4'-ジアミノジフェニルエーテル、3, 3'-ジアミノジフェニルエーテル、3, 4'-ジアミノジフェニルエーテル、1, 5-ジアミノナフタレン、4, 4'-ジアミノジフェニルジエチルシラン、4, 4'-ジアミノジフェニルシラン、4, 4'-ジアミノジフェニルエチルホスフィンオキシド、4, 4'-ジアミノジフェニルN-メチルアミン、4, 4'-ジアミノジフェニルN-フェニルアミン、1, 4-ジアミノベンゼン(p-フェニレンジアミン)、1, 3-ジアミノベンゼン、1, 2-ジアミノベンゼン、及びそれらの類似物を含み、これらを単独または、任意の割合の混合物が好ましく用い得る。

【0020】これらジアミンにおいて、4, 4'-ジアミノジフェニルエーテル及びp-フェニレンジアミンが特に好ましく、また、これらをモル比で100:0から0:100、好ましくは100:0から10:90の割合で混合した混合物が好ましく用い得る。

【0021】ポリアミド酸を合成するための好ましい溶媒は、アミド系溶媒すなわちN, N-ジメチルホルムアミド、N, N-ジメチルアセトアミド、N-メチル-2-ピロリドンなどであり、N, N-ジメチルホルムアミド、N, N-ジメチルアセトアミドが特に好ましく用い得る。

【0022】また、イミド化を化学キユア法により行なう場合、本発明にかかるポリアミド酸組成物に添加する化学的転化剤は、例えば脂肪族酸無水物、芳香族酸無水物、N, N'-ジアルキルカルボジイミド、低級脂肪族ハロゲン化物、ハロゲン化低級脂肪族ハロゲン化物、ハロゲン化低級脂肪族酸無水物、アリールホスホン酸ジハロゲン化物、チオニルハロゲン化物またはそれら2種以上の混合物が挙げられる。それらのうち、無水酢酸、無水プロピオン酸、無水ラク酸等の脂肪族酸無水物またはそれらの2種以上の混合物が、好ましく用い得る。化学的転化剤の量としては、ポリアミド酸溶液100部に対して1〜80部、好ましくは5〜70部、さらに好ましくは10〜50部の割合で用い得る。少なすぎるとイミド化率

が好適な範囲よりも小さくなる傾向があり、多すぎると硬化が速くなり、支持体上に流延するのが困難となる。

【0023】また、イミド化を効果的に行うためには、化学的転化剤に触媒を同時に用いることが好ましい。触媒としては脂肪族第三級アミン、芳香族第三級アミン、複素環式第三級アミン等が用いられる。それらのうち複素環式第三級アミンから選択されるものが特に好ましく用い得る。具体的にはキノリン、イソキノリン、 β -ピコリン、ピリジン等が単独又は任意の割合の混合物として好ましく用いられる。触媒の量としてはポリアミド酸溶液100部に対して0.1~30部、好ましくは0.5~20部、さらに好ましくは1~15部の割合で用い得る。少なすぎるとイミド化率が好適な範囲よりも小さくなる傾向があり、多すぎると硬化が速くなり、支持体上に流延するのが困難となる。

【0024】以下、具体的に本発明を説明する。

【0025】化学的転化剤及び触媒を低温でポリアミド酸溶液中に混合し、引き続いてこのポリアミド酸組成物をガラス板、アルミ箔、エンドレスステンレスベルト、ステンレスドラムなどの支持体上にフィルム状にキャストし、支持体上で80℃~200℃、好ましくは100℃~180℃の温度領域で少なくとも2水準の温度水準で段階的に加熱することで化学的転化剤及び触媒を活性化することによって部分的に硬化及び/または乾燥した後支持体から剥離してポリアミド酸フィルム（以下、ゲルフィルムという）を得る。

【0026】ゲルフィルムは、ポリアミド酸からポリイミドへの硬化の中間段階にあり、自己支持性を有し、次式（2）から算出される揮発分含量は5~500%の範囲、好ましくは5~100%、より好ましくは10~80%、最も好ましくは30~60%の範囲にある。この範囲のフィルムを用いることが好適であり、外れると所定の効果が発現しにくい。

【0027】 $(A-B) \times 100 / B \cdots (2)$
式（2）中、Aはゲルフィルムの重量、Bはゲルフィルムを450℃で20分間加熱した後の重量を表す。

【0028】少なくとも2水準の温度水準で段階的に加熱する際、最初の加熱段階では、80℃~160℃、好ましくは100℃~140℃の温度領域で加熱することが好ましい。この時、第1段階の温度T1が低すぎるとゲルフィルム中の揮発分含量が大きくなる傾向があり、高すぎると化学的転化剤および触媒の揮発速度が速くなり、化学的イミド化が進行しにくくなる。

【0029】また少なくとも2段階の温度段階で段階的に加熱する際、最後の加熱段階では、120℃~200℃、好ましくは140℃~180℃の温度領域で加熱することが好ましい。この温度T2が低すぎると、ゲルフィルム中の揮発分含量が大きくなる傾向にあり、これを好適な範囲内に抑えるためには加熱時間を長くする必要がある、すなわち生産性が低下してしまう。また、温度

T2が高すぎるとゲルフィルム中の揮発分含量が好適な範囲よりも小さくなりやすく、所定の効果を発現しにくくなる。

【0030】また、3水準以上の温度水準で段階的に加熱する際、最初と最後の加熱段階を除く中間の加熱段階では、80℃~200℃、好ましくは100℃~180℃の温度領域で加熱することが好ましい。

【0031】また、少なくとも2水準以上の温度水準で段階的に加熱する際、加熱の初期段階では化学的転化剤および触媒の揮発を抑えつつ化学的転化剤および触媒を活性化して硬化を進行させる必要があり、後期段階では乾燥を進める必要があるため、加熱段階が進むにつれて加熱温度が高くなるようにすることが好ましい。

【0032】上記第1段階の温度T1の変動温度幅は、-10℃~+10℃が好ましく、さらに好ましくは-5℃~+5℃である。同様に、最終段階の温度T2の変動温度幅は、-10℃~+10℃が好ましく、さらに好ましくは-5℃~+5℃である。必要に応じて、第3段階以上の温度で加熱する場合も、同様の温度変動幅が採用される。

【0033】生産時間を短縮するために、温度T1での加熱後、短時間のうちに温度T2へ昇温するのがよい。

【0034】上記のようにして得られたゲルフィルムの端部を固定して硬化時の収縮を回避して乾燥し、水、残留溶媒、残存転化剤及び触媒を除去し、そして残ったアミド酸を完全にイミド化して、本発明の製造方法による生産性を改善し、引裂伝搬強度及び接着強度の低下を防ぎ、引張強度の向上したポリイミドフィルムが得られる。

【0035】この時、最終的に500~580℃の温度で5~400秒加熱するのが好ましい。この温度より高い及び/または時間が長いと、フィルムの熱劣化が起こり問題が生じる。逆にこの温度より低い及び/または時間が短いと所定の効果が発現しないことがある。

【0036】また、このようにして得られるポリイミドフィルムの式（1）により計算される加熱減量率が、0.5~2.5重量%、好ましくは0.3~2.0重量%、より好ましくは0.3~1.5重量%、最も好ましくは0.5~1.5重量%で、かつこの加熱減量分のうち、フィルムの総重量に対して0.01重量%以上、好ましくは0.05重量%以上、より好ましくは0.1重量%以上が触媒となるように、本製造方法におけるすべての加熱段階において、加熱温度および加熱時間を調節することが望ましい。加熱減量率および加熱減量成分が上記範囲を外れると所定の効果が発現しない事がある。

【0037】

【実施例】以下に実施例を挙げて、本発明の効果を具体的に説明するが、本発明は、以下の実施例に限定されるものではなく、当業者は本発明の範囲を逸脱することなく、種々の変更、修正、及び改変を行い得る。なお、ポ

リイミドフィルムの引裂伝播強度はASTM D-1938、引張強度はJIS C-2318、接着強度はナイロン・エポキシ系接着剤を用いて電解銅箔（三井金属鉱業社製、商品名3ECLP、厚み35 μ m）とポリイミドフィルムとを張り合わせ、3層銅張積層板を作製し、JIS C-6481に従って銅パターン幅3mmで90度ピールで評価した。

【0038】また、加熱減量分中の触媒量については、熱分解ガスクロマトグラフィー（ヒューレットパッカード社製HP5890-II、分解条件：445℃ 20秒）により決定した。

（比較例1）ピロメリット酸二無水物／4，4'-ジアミノジフェニルエーテル／p-フェニレンジアミンをモル比で4／3／1の割合で合成したポリアミド酸の18.5重量%のDMF溶液100gに無水酢酸35gと β ピコリン5gからなる転化剤を混合、攪拌し、遠心分離による脱泡の後、アルミ箔上に厚さ400 μ mで流延塗布した。攪拌から脱泡までは0℃に冷却しながら行った。このアルミ箔とポリアミド酸溶液の積層体を120℃で150秒間加熱し、自己支持性を有するゲルフィルムを得た。このゲルフィルムの残揮発分含量は38重量%であった。このゲルフィルムをアルミ箔から剥がし、フレームに固定した。このゲルフィルムを300℃、400℃、次いで500℃で各30秒間加熱して厚さ25 μ mのポリイミドフィルムを製造した。このポリイミドフィルムの基本的な機械特性を表1に示す。

（比較例2）アルミ箔とポリアミド酸溶液の積層体を160℃、75秒間加熱した以外は、比較例1と全く同様にして厚さ25 μ mのポリイミドフィルムを製造した。中間段階で経由したゲルフィルムの残揮発分含量は39重量%であった。このポリイミドフィルムの基本的な機械特性を表1に示す。

*（実施例1）比較例1と同様にして、アルミ箔上にポリアミド酸を流延塗布した。このアルミ箔とポリアミド酸溶液の積層体を120℃で10秒、140℃で10秒、160℃で55秒加熱して自己支持性を有するゲルフィルムを得た。このゲルフィルムの残揮発分含量は56重量%であった。このゲルフィルムを300℃、400℃、次いで500℃で各30秒間加熱して厚さ25 μ mのポリイミドフィルムを製造した。このポリイミドフィルムの基本的な機械特性を表1に示す。

10 （比較例3）ピロメリット酸二無水物／4，4'-ジアミノジフェニルエーテルをモル比で1／1の割合で用いた以外は比較例1と全く同様にして、厚さ25 μ mのポリイミドフィルムを製造した。中間段階で経由したゲルフィルムの残揮発分含量は35重量%であった。このポリイミドフィルムの基本的な機械特性を表1に示す。

（比較例4）アルミ箔とポリアミド酸溶液の積層体を160℃、75秒間加熱した以外は、比較例3と全く同様にして厚さ25 μ mのポリイミドフィルムを製造した。中間段階で経由したゲルフィルムの残揮発分含量は37重量%であった。このポリイミドフィルムの基本的な機械特性を表1に示す。

20 （実施例2）比較例2と同様にしてアルミ箔上にポリアミド酸を流延塗布した。このアルミ箔とポリアミド酸溶液の積層体を120℃で10秒、140℃で10秒、160℃で55秒加熱して自己支持性を有するゲルフィルムを得た。このゲルフィルムの残揮発分含量は54重量%であった。このゲルフィルムを300℃、400℃、次いで500℃で各30秒間加熱して厚さ25 μ mのポリイミドフィルムを製造した。このポリイミドフィルムの基本的な機械特性を表1に示す。

【0039】

* 【表1】

例	ポリイミド構造	ゲルフィルム 作成時間	引裂伝播強度 (g/mm)	引張強度 (kg/mm ²)	引張破断時 伸び(%)	接着強度 (N/cm)	加熱減量率 wt%	触媒残量 wt%
比較例1	PMDA/ 4,4'ODA/p-PDA	150秒	267	285	70	11.0	0.78	N. D.
比較例2	〃	75秒	220	263	71	8.9	0.68	N. D.
実施例1	〃	75秒	255	312	68	12.1	0.82	0.005
比較例3	PMDA/4,4'ODA	150秒	325	240	99	11.1	0.78	N. D.
比較例4	〃	75秒	253	222	101	9.2	0.80	N. D.
実施例2	〃	75秒	318	268	100	12.9	0.83	0.008

N. D.: 検出できず

【0040】

【発明の効果】本発明のポリイミドフィルムの製造方法

により、生産性よく高い機械的特性を有するポリイミドフィルムを製造することができる。

フロントページの続き

(51) Int. Cl.⁷

識別記号

F I

ターム (参考)

C O 8 L 79:08

C O 8 L 79:08

Z

F ターム (参考) 4F071 AA60 AC09 AC12 AF14 AG05
AG28 AG34 AH12 AH16 BA02
BB02 BC10
4F205 AA40 AB03 AC05 AG01 GA07
GC02 GC07 GN17 GW06
4J043 PA15 PA19 YA06 YA07 YA08
ZA12